

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **2001011340 A**

(43) Date of publication of application: **16.01.01**

(51) Int. Cl. **C09C 1/28**  
**A61K 7/00**  
**A61K 7/02**  
**A61K 7/021**  
**A61K 7/027**  
**A61K 7/031**  
**A61K 7/032**  
**A61K 7/043**  
**C09C 3/06**

(21) Application number: **2000071967**

(22) Date of filing: **15.03.00**

(30) Priority: **28.04.99 JP 11121814**

(71) Applicant: **NIPPON SHEET GLASS CO LTD**

(72) Inventor: **YOKOI KOJI**

(54) **PEARLESCENT PIGMENT AND COSMETIC  
CONTAINING THE SAME**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an inexpensive pearlescent pigment which is non-dark, exhibits highly favorable brightness, does not have a rough touch to the skin, and has excellent spread and excellent fit touch, and to provide a cosmetic which contains the pearl gloss pigment and has an excellent bright appearance.

SOLUTION: This pearlescent pigment comprises glass

flakes which contain silica (SiO<sub>2</sub>) in an amount of 45 to 75 wt.%, have an average thickness of 0.1 to 2.5 μm, an average particle diameter of 1 to 300 μm and an aspect ratio of 10 to 500, and is produced by a melting method. The aspect ratio is a value (average particle diameter/average thickness) obtained by dividing the average particle diameter by the average thickness. The obtained base material flakes are preferably coated with a noble metal and titania.

COPYRIGHT: (C)2001,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2001-11340  
(P2001-11340A)

(43) 公開日 平成13年1月16日 (2001.1.16)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	特許出願公開番号 (参考)
C 0 9 C 1/28		C 0 9 C 1/28	4 C 0 8 3
A 6 1 K 7/00		A 6 1 K 7/00	V 4 J 0 3 7
			N
	7/02	7/02	P
	7/021	7/021	

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-71967(P2000-71967)  
(22) 出願日 平成12年3月15日 (2000.3.15)  
(31) 優先権主張番号 特願平11-121814  
(32) 優先日 平成11年4月28日 (1999.4.28)  
(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000004008  
日本板硝子株式会社  
大阪府大阪市中央区道修町3丁目5番11号  
(72) 発明者 横井 浩司  
大阪府大阪市中央区道修町3丁目5番11号  
日本板硝子株式会社内  
(74) 代理人 100069084  
弁理士 大野 精市

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 真珠光沢顔料およびそれを配合した化粧料

(57) 【要約】

【課題】 化粧料に配合した場合に、くすみがなく、非常に良好な光輝性を発現し、肌上でのざらつき感がなく、のびおよびフィット感に優れる安価な真珠光沢顔料、さらにはそれを配合する光輝感に優れた化粧料を提供する。

【解決手段】 シリカ (SiO<sub>2</sub>) を45～75重量%含有し、平均厚さ0.1～2.5 μm、平均粒径1～300 μm、アスペクト比10～500のガラスフレークを熔融法により製造する。アスペクト比とは、平均粒径を平均厚さで除した値 (平均粒径/平均厚さ) をいう。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 母材がシリカ( $\text{SiO}_2$ )を45～75重量%含有し、平均厚さが0.1～2.5 $\mu\text{m}$ 、平均粒径が1～300 $\mu\text{m}$ 、アスペクト比が10～500である真珠光沢顔料。

【請求項2】 上記母材の表面に貴金属およびチタニアが付着した請求項1に記載の真珠光沢顔料。

【請求項3】 請求項1または2に記載の真珠光沢顔料を配合した化粧料。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、母材の組成、厚さ、粒径およびアスペクト比が一定範囲にある真珠光沢を有する顔料およびその顔料を配合した化粧料に関する。さらには、前記真珠光沢顔料が金属酸化物の被膜を備えたガラスフレークであるものに関する。

## 【0002】

【従来の技術】真珠光沢を示す光輝性薄片状粉体として、天然や合成の雲母(マイカ)を母材とし、その表面に酸化チタンや酸化鉄などをコーティングしたいわゆるパールマイカが従来から知られている。しかし、マイカは劈開性があるため、その表面に段差ができ易く、表面平滑性が十分でない場合が多い。そのため、マイカを母材とした真珠光沢顔料は良好な光輝感を発現するとは言い難い。また、天然雲母には不純物が多く含まれることから、これを母材とする真珠光沢顔料は、化粧料に配合された場合にくすみの原因となる。

【0003】真珠光沢顔料としては、特開平9-176515号公報に、平均形状比(平均厚さ/平均粒度)1/9～1、粒度25～500 $\mu\text{m}$ の金属酸化物コーティングフレーク状粉体が記載されている。このフレーク状粉体は、化粧料材料に使用された場合、計算上その厚さが2.78 $\mu\text{m}$ 以上となることから、肌上でざらざら感を与え、また平均形状比が大きく立方体に近い形状のため、肌上でののびまたはフィット感が悪く、さらに同重量の薄いフレークに比べて枚数が少なくなるため、反射による光輝感が少ないなどの問題がある。

【0004】また、特開平6-116507号公報には、金属アルコキシドから製造したフレーク状シリカガラスを母材とし、チタニアまたはジルコニアをコーティングした真珠光沢顔料が記載されている。このフレーク状シリカガラスは、金属アルコキシドが非常に高価であることからコスト上の問題がある。また、シリカガラスは通常のガラスと比較してシリカ含有率が高く硬度が高いため、化粧料材料に用いられた場合、材料配合工程で練り込まれる際に破砕され、その粒度が保てなくなるおそれが高い。粒度が小さくなるほど化粧料中に均一に分散され易くなる利点はあるが、一方で真珠光沢顔料としての光輝感を発現し難くなるなどの問題がある。

【0005】さらに、特開昭62-187770号公報

には、ガラスフレークに微粒子酸化チタンをコーティングしてなる紫外線遮へい顔料が記載されている。しかし、この紫外線遮へい顔料は、真珠光沢感が事実上発現しない量の酸化チタンをコーティングするものである。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】上述のように真珠光沢顔料を化粧品に配合することは従来から広く行われているが、天然または合成のマイカを母材とする真珠光沢顔料は、その不十分な表面平滑性のために、良好な光輝感を発現するとは言い難い面がある。また、天然雲母を母材とする場合では、不純物が含まれているため、化粧料に配合した場合、くすみの原因となる。さらに、フレーク状シリカガラスを母材とする場合では、コスト面および粒度が維持できない問題がある。

【0007】この発明は、このような従来技術に存在する問題に着目してなされたものである。その目的とするところは、化粧料に配合した場合に、くすみがなく、非常に良好な光輝性を発現し、肌上でのざらつき感がなく、のびおよびフィット感に優れる安価な真珠光沢顔料を提供することにある。さらには、のびがよく、フィット感に優れ、ざらつき感を生じることのない、光輝感に優れた化粧料を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、請求項1に記載の発明の真珠光沢顔料は、母材がシリカ( $\text{SiO}_2$ )を45～75重量%含有し、平均厚さ0.1～2.5 $\mu\text{m}$ 、平均粒径1～300 $\mu\text{m}$ 、アスペクト比10～500であるものである。なお、前記アスペクト比とは、平均粒径を平均厚さで除した値(平均粒径/平均厚さ)をいう。

【0009】請求項2に記載の発明の真珠光沢顔料は、請求項1に記載の発明において、母材の表面に貴金属およびチタニアが付着したものである。

【0010】請求項3に記載の発明の化粧料は、請求項1または2に記載の真珠光沢顔料を配合したものである。

## 【0011】

【発明の実施の形態】以下、この発明の実施形態について詳細に説明する。この発明の真珠光沢顔料は、母材がシリカ( $\text{SiO}_2$ )を45～75重量%含有するものである。この母材としては、熔融法で製造されるガラスフレークが挙げられる。ガラスフレークは、公知の技術、たとえば特公昭41-17148号公報、特公昭45-3541号公報に記載の方法で製造することができる。すなわち、熔融したガラスを円型スリットから押し出し、そのガラスの内部に空気などを注入して中空状の円筒に膨らませ薄く均一なガラスフィルムとし、それを粉砕する方法で製造される。このガラスフレークは、安価な原料を熔融して製造するため、コストを低く抑えることができる。また、自由表面を持つ熔融ガラスを冷却固化するた

め、その表面は非常に平滑である。さらに、非晶質で劈開性を有しないので、その表面に段差が生じない。また、シリカが80重量%以上含有されるシリカガラスに比べ若干の柔軟性を有するため、化粧料に配合されても破碎され難く、配合時の粒度を保つことができる。ガラスとしては、熔融成形できるものならどのような組成でもよいが、一般に使われているソーダライムガラス、Cガラス、Eガラスなどが例示される。これらガラスは、シリカを上記範囲で含有するものである。

【0012】また、平均厚さ0.1～2.5 $\mu\text{m}$ のガラスフィルムを粉碎分級することにより、平均粒径1～300 $\mu\text{m}$ 、アスペクト比10～500のガラスフレークが製造される。ガラスフレークは、製造技術上0.1 $\mu\text{m}$ より薄くできず、一方2.5 $\mu\text{m}$ より厚い場合、それが配合された化粧料にざらつき感を生じさせ、かつ光輝感を低下させる。アスペクト比が10より小さい場合は、配合された化粧料の肌でののびおよびフィット感を悪化させ、一方500より大きい場合は、その化粧料の肌へののりを悪化させ、ざらざら感を強くし過ぎる。その平均粒径が1 $\mu\text{m}$ 未満の場合は、配合された化粧料に十分な光輝感を付与することができず、一方300 $\mu\text{m}$ より大きい場合は、配合された化粧料において粒子が目立ち過ぎ、仕上がりを不自然なものにしてしまう。

【0013】母材の形状が上記範囲にある場合、その母材のシリカの含有率によって、ガラスフレークの性質が異なる。シリカの含有率が75重量%より高くなると、熔融法による生産が困難になり、ソルゲル法による生産が實際上主となる。シリカの含有率が高く、ソルゲル法で製造されるガラスを以下「シリカガラス」と称するが、形状が上記範囲にあるシリカガラスのフレークは、上述の如く硬度が高くかつ脆いため、一定以上の外力が\*

\*加わると容易に破碎される。たとえば、シリカガラスのフレークに超音波を照射すると、その平均粒径が小さくなることが確認される。具体的には、超音波照射装置付きレーザー回折粒度分布測定装置（セイシン企業社製Pro7000S）を65Wで1分間出力させ、シリカガラスのフレークに超音波を照射すると、その平均粒径は下記「表1」のように変化する。

【0014】

【表1】

シリカガラスのフレークに超音波を照射した場合の粒径の変化

項目	初期平均粒径( $\mu\text{m}$ )	超音波照射後( $\mu\text{m}$ )
サンプル1	6.02	5.90
サンプル2	9.38	9.20
サンプル3	15.62	15.40
サンプル4	24.49	21.78
サンプル5	25.93	23.30
サンプル6	26.69	25.13
サンプル7	28.41	23.19
サンプル8	50.19	35.58
サンプル9	55.50	36.48
サンプル10	58.93	39.04

注) サンプル1～10には、SGシリーズ(日本板硝子社製)を用いた。

【0015】また、超音波の照射時間が増加するにしたがって、シリカガラスのフレークの平均粒径は小さくなることが確認される。具体的には、超音波洗浄装置（ヴェルヴォークリア商会社製VS-70R）を60Wで出力させ、シリカガラスのフレークに超音波を照射すると、その平均粒径は経時的に下記「表2」のように変化する。

【0016】

【表2】

シリカガラスのフレークに超音波を照射した場合の粒径の経時変化

項目\照射時間	0min	0.5min	1min	2min	5min
サンプル1( $\mu\text{m}$ )	23.19	14.70	13.63	12.35	11.25
サンプル2( $\mu\text{m}$ )	69.08	37.78	34.30	30.74	27.88
サンプル3( $\mu\text{m}$ )	183.80	85.73	67.70	60.04	58.05

注) サンプル1～3には、SGシリーズ(日本板硝子社製)を用いた

【0017】「表1」および「表2」より、シリカガラスのフレークは、粒径が大きいほど超音波による破碎が起こり易いことが判る。また、経時的には、超音波照射の初期に破碎が起こり易いことが判る。このようにシリカガラスのフレークは、超音波の衝撃によっても破碎されてしまうが、ガラスフレークではこのような現象は確認されない。これは、ガラスフレークがシリカガラスのフレークほど硬度が高くなく若干の柔軟性を有するためであると考えられる。したがって、ガラスフレークを母材とする真珠光沢顔料は、化粧料の材料として他の材料と配合され練り込まれた場合に、シリカガラスのフレークよりも当初の粒径を維持でき、その結果化粧料中でより効果的に光輝感を発現できる。なお、ガラスフレーク

のシリカの含有率は、母材に必要な強度と適度な柔軟性とを兼ね備えるために、50～70重量%、さらには55～65重量%であることが好ましい。

【0018】この真珠光沢顔料は、その名の如く外観上真珠に似た光沢を示すものであり、これはガラスフレークにチタニア( $\text{TiO}_2$ )、ジルコニアまたは酸化鉄などの金属酸化物からなる被膜を設けることにより得られる。この被膜の成形方法は、公知の技術を利用すればよく、たとえば特公昭43-25644号公報、特開昭47-34529号公報に記載されている。具体的には、硫酸チタニル溶液または四塩化チタン溶液にガラスフレークを懸濁させ、かかる溶液を昇温することによりチタニアを析出させ、ガラスフレーク上に被膜を設ける方法であ

る。ただし、この方法に限定するものではなく、ガラスフレーク上に薄く被膜を設けることができる方法であれば、どのような方法でもよい。

【0019】ガラスフレーク上の被膜の厚さを制御することにより、干渉による任意の色調を発現させることができる。この被膜の厚さは、20～250nmが好ましく、20nm未満では光輝感が発現し難く、一方250nmより厚ければ原料が多く必要となるためコスト的に好ましくない。

【0020】この被膜にチタニアを用いる場合は、被膜成形後にガラスフレークを800～1,200℃で加熱処理することが多い。これは、チタニアにはアナターズ型、ブルーカイト型およびルチル型の3つの結晶系があり、アナターズ型をルチル型に転移させるために行われるものである。上述のように溶液からの析出によりチタニア被膜を設ける場合は、まずアナターズ型が析出する。アナターズ型はルチル型に比べ化学的に不安定型であるため、ガラスフレークに耐久性および耐候性が要求される場合は、アナターズ型よりルチル型が指向される。さらに、ルチル型のチタニア被膜は、アナターズ型よりも緻密な膜を形成することから、より高い光輝感すなわち鮮やかな色感を発現する。よって、ガラスフレークの被膜としては、ルチル型のチタニアからなるものが好ましく、また指向されている。

【0021】上記結晶系転移のための加熱処理温度が800℃以下の場合、チタニアの結晶系はアナターズ型のままであるが、一方800℃より高くするとルチル型に転移することが知られている。しかし、800℃以上に加熱した場合、ガラスフレークは変形することがある。この変形を防止するため、本発明者は、800℃以下の加熱処理でもルチル型に転移する方法を、鋭意研究の末見出した。それは、上記の溶液からチタニアを析出させる際に、ガラスフレークに貴金属を微量触媒として付着させておく方法である。ここで貴金属とは、金、銀および白金族(Ru,Rh,Pd,Os,Ir,Pt)を指す。貴金属をガラスフレークに付着させる方法は、とくに限定されるものではなく、たとえば塩化白金酸の溶液中にガラスフレークを投入してしばらく放置する方法が挙げられる。この方法において、600℃以下の加熱処理でルチル型への結晶系転移が起こることを確認した。

【0022】ガラスフレーク上の被膜の屈折率によって、ある色調を発現させる被膜の厚さは若干異なるが、一般的には被膜の厚さと発色(反射光)の関係は以下の「表3」のとおりである。

【0023】

【表3】

発色	被膜厚さ (nm)
シルバー	40～60
黄	60～80
赤	80～100
青	100～140
緑	120～160

【0024】上記金属酸化物の被膜を備えた特定の形状のガラスフレークすなわち真珠光沢顔料を配合することにより、くすみがなく澄んだ発色を示し、肌上でざらつき感がなく、さらに肌上でののびおよびフィット感に優れる化粧料が得られる。

【0025】この化粧料における真珠光沢顔料の配合率は、1～100重量%が好ましい。配合率が1重量%未満の場合は、真珠光沢顔料の光輝感が十分に発揮されない。一方、100重量%であっても、肌上では人脂などが存在するため、これらと結合し化粧料として機能しうる。

【0026】この化粧料には、フェーシャル化粧料、メーキャップ化粧料、ヘア化粧料など幅広い範囲の化粧料が含まれる。これらの中でも、とくにファンデーション、粉白粉、アイシャドー、ブラッシャー、化粧下地、ネイルエナメル、アイライナー、マスカラ、口紅、ファンシーパウダーなどのメーキャップ化粧料において、この真珠光沢顔料は好適に使用される。

【0027】この真珠光沢顔料は、化粧料の目的に応じて、適宜疎水化処理が施されてもよい。疎水化処理の方法としては、第一にメチルヒドロジェンポリシロキサン、高粘度シリコンオイルおよびシリコン樹脂などのシリコン化合物による処理方法、第二にアニオン活性剤、カチオン活性剤などの界面活性剤による処理方法、第三にナイロン、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレン、テフロン、ポリアミノ酸などの高分子化合物による処理方法、第四にパーフルオロ基含有化合物、レシチン、コラーゲン、金属石鹸、親油性ワックス、多価アルコール部分エステルまたは完全エステルなどによる処理方法、第五にこれらを複合した処理方法が挙げられる。ただし、一般に粉末の疎水化処理に適用できる方法であれば、上記の方法に限定されるのではない。

【0028】この化粧料には、通常化粧料に用いられる他の材料を必要に応じて適宜配合することができる。たとえば、タルク、カオリン、セリサイト、白雲母、金雲母、紅雲母、黒雲母、リチア雲母、パーミキュライト、炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、珪ソウ土、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸バリウム、硫酸バリウム、ケイ酸ストロンチウム、タングステン酸金属塩、シリカ、ヒドロキシアパ

タイト、ゼオライト、窒化ホウ素、セラミックスパウダーなどの無機粉末、ナイロンパウダー、ポリエチレンパウダー、ポリスチレンパウダー、ベンゾグアナミンパウダー、ポリ四弗化エチレンパウダー、ジスチレンベンゼンポリマーパウダー、エポキシパウダー、アクリルパウダー、微結晶性セルロースなどの有機粉末、酸化チタン、酸化亜鉛などの無機白色顔料、酸化鉄（ベンガラ）、チタン酸鉄などの無機赤色系顔料、 $\gamma$ 酸化鉄などの無機褐色系顔料、黄酸化鉄、黄土などの無機黄色系顔料、黒酸化鉄、カーボンブラックなどの無機黒色系顔料、マンゴバイオレット、コバルトバイオレットなどの無機紫色系顔料、酸化クロム、水酸化クロム、チタン酸コバルトなどの無機緑色系顔料、群青、紺青などの無機青色系顔料、酸化チタン被膜雲母、酸化チタン被膜オキシ塩化ビスマス、オキシ塩化ビスマス、酸化チタン被膜タルク、魚鱗箔、着色酸化チタン被膜雲母などのパール顔料、アルミニウムパウダー、銅パウダーなどの金属粉末顔料、赤色201号、赤色202号、赤色204号、赤色205号、赤色220号、赤色226号、赤色228号、赤色405号、橙色203号、橙色204号、黄色205号、黄色401号および青色404号などの有機顔料、赤色3号、赤色104号、赤色106号、赤色227号、赤色230号、赤色401号、赤色505号、橙色205号、黄色4号、黄色5号、黄色202号、黄色203号、緑色3号および青色1号のジルコニウム、バリウムまたはアルミニウムレーキなどの有機顔料、クロロフィル、 $\beta$ -カロチンなどの天然色素、スクワラン、流動パラフィン、ワセリン、マイクロクリスタリンワックス、オケゾライト、セレシン、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、イソステアリン酸、セチルアルコール、ヘキサデシルアルコール、オレイルアルコール、2-エチルヘキサン酸セチル、パルミチン酸2-エチルヘキシル、ミリスチン酸2-オクチルドデシル、ジ-2-エチルヘキサン酸ネオペンチルグリコール、トリ-2-エチルヘキサン酸グリセロール、オレイン酸-2-オクチルドデシル、ミリスチン酸イソプロピル、トリイソステアリン酸グリセロール、トリヤシ油脂肪酸グリセロール、オリーブ油、アボガド油、ミツロウ、ミリスチン酸ミリスチル、ミンク油、ラノリンなどの各種炭化水素、シリコーン油、高級脂肪酸、油脂類のエステル類、高級アルコール、ロウなどの油性成分、アセトン、トルエン、酢酸ブチル、酢酸エステルなどの有機溶剤、アルキド樹脂、尿素樹脂などの樹脂、カンファ、クエン酸アセチルトリブチルなどの可塑剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、防腐剤、界面活性剤、保湿剤、香料、水、アルコール、増粘剤などが挙げられる。

【0029】この化粧料の形態は、とくに限定されるものではなく、粉末状、ケーキ状、ペンシル状、スティック状、軟膏状、液状、乳液状、クリーム状などである。

【0030】なお、この発明は次のような実施形態として具現化することも可能である、・ガラスフレークに白金などの貴金属を付着させ、そこにアナタース型のチタニアを付着させ、600℃以下に加熱することにより、ルチル型チタニアからなる被膜を備えたガラスフレークを製造する方法。

#### 【0031】

【実施例】以下に実施例および比較例を挙げてこの発明をより詳細に説明するが、この発明の要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。まず、ガラスフレークに金属酸化物を被膜した真珠光沢顔料について説明する。

#### 【0032】（実施例1）～（実施例4）

Cガラス（ $\text{SiO}_2$ : 6.5重量%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ : 4重量%、 $\text{CaO}$ : 1.4重量%、 $\text{MgO}$ : 3重量%、 $\text{B}_2\text{O}_3$ : 5重量%、 $\text{Na}_2\text{O}$ : 8重量%、 $\text{K}_2\text{O}$ : 1重量%）を1、200℃で熔融し、円筒形にブローし延伸薄膜化して冷却固化することにより所定の厚さにし、それを粉砕分級して、所定の厚さ、粒度およびアスペクト比を有するガラスフレークを製造した。このガラスフレークを硫酸チタニル溶液中に懸濁させ、この懸濁液を加熱し1時間沸騰させることにより、ガラスフレーク表面に種々の厚さのチタニアを被膜させ、濾過水洗後乾燥させ、その後600℃で30分間熱処理して、チタニア被膜を備えたガラスフレークを得た。チタニア被膜の結晶系をX線回折で調べたところ、いずれもアナタース型であった。

【0033】ここで、チタニア被膜の厚さによりガラスフレークの発色が異なり、またガラスフレークの厚さおよび粒度により比表面積が異なるため、各実施例で目的とするチタニア被膜を得るための条件は一義的には決定できない。そのため、チタニア被膜の形成段階でガラスフレークを懸濁液中から適宜サンプリングし、その色目を確認しながら硫酸チタニルの添加量を加減して、任意の色調のガラスフレークを製造した。

【0034】これら種々の厚さ、粒度およびアスペクト比を有するガラスフレークを、直径60mm×高さ10mmのシリカのセル中に詰め、それを色彩色差計（ミノルタ社製CR300）で明度（L値）を測定した。また、光沢計（日本電色工業株式会社製VGS-1001D）で、45°/0°の拡散反射率を測定し、輝度を評価した。これらガラスフレークの特性および輝度評価の結果を、下記「表4」に示す。

【0035】（比較例1）～（比較例3）市販のアナタース型のチタニア被膜を備えたマイカと、ガラスフレーク（RCF-140 日本板硝子社製）に上記実施例の方法でアナタース型のチタニア被膜を成形したものについて、上記と同様の方法で、明度（L値）および45°/0°の拡散反射率を測定し、その輝度を評価した。その結果を、下記「表4」に併せて示す。なお、比較例3のガラスフレークには、貴金属は付着していない。

【0036】実施例1～4のガラスフレークは、いずれも輝度(L値および拡散反射率)が比較例1および2のマイカに比べ高く、非常に澄んだ明るく高い光輝感を示すことが判る。

【0037】

【表4】

アタカス型のチタニア被膜を備えたガラスフレークおよびマイカの輝度と光沢性

実施例	1	2	3	4	比較例1	2	3
母材	ガラス	ガラス	ガラス	ガラス	マイカ	マイカ	ガラス
平均厚さ(μm)	2.3	2.3	2.3	1.3	0.4	0.6	5.0
平均粒径(μm)	450	80	40	25	40	80	140
アスペクト比	196	35	17	19	100	113	28
反射色	シルバー	シルバー	シルバー	赤	シルバー	シルバー	シルバー
明度(L値)	93	92	91	91	88	89	90
拡散反射率	66	62	61	63	52	54	60

【0038】(実施例5)～(実施例8)

上記実施例1～4と同様にして、所定の形状のガラスフレークを製造した。このガラスフレークを塩化白金酸を添加した四塩化チタン溶液中に懸濁させ、この懸濁液を加熱し1時間沸騰して、ガラスフレーク表面に種々の厚さのチタニア被膜を設けた。このガラスフレークを濾過水洗後乾燥させ、その後600℃で30分間熱処理した。チタニア被膜の結晶系をX線回折で調べたところ、いずれもルチル型であった。これは、ガラスフレークに付着した白金が、ルチル型への転移を促進する触媒とし※

※で作用したためと考えられる。これら種々の厚さ、粒度およびアスペクト比を有するガラスフレークについて、上記実施例1～4と同様にして輝度を評価した。その結果を下記「表5」に示す。

【0039】(比較例4)～(比較例7)

市販のルチル型のチタニア被膜を備えるマイカについて、上記同様にして輝度を評価した。その結果を下記「表6」に示す。

【0040】

【表5】

ルチル型のチタニア被膜を備えたガラスフレークの輝度と光沢性

実施例	5	6	7	8
母材	ガラス	ガラス	ガラス	ガラス
平均厚さ(μm)	2.3	1.3	1.3	0.7
平均粒径(μm)	300	80	80	25
アスペクト比	130	62	62	36
反射色	シルバー	ゴールド	赤	青
明度(L値)	95	94	93	92
拡散反射率	70	62	74	74

【0041】

★★【表6】

ルチル型のチタニア被膜を備えたマイカの輝度と光沢性

比較例	4	5	6	7
母材	マイカ	マイカ	マイカ	マイカ
平均厚さ(μm)	0.4	0.4	0.4	0.6
平均粒径(μm)	40	40	40	80
アスペクト比	100	100	100	133
反射色	シルバー	ゴールド	赤	青
明度(L値)	91	90	90	89
拡散反射率	50	60	65	63

【0042】「表5」および「表6」より、実施例5～8のガラスフレークは、いずれも輝度（L値および拡散反射率）が比較例4～7のマイカに比べ高く、非常に澄んだ明るく高い光輝感を示すことが判る。

【0043】つぎに、上記チタニア被膜を備えたガラス\*化粧料に関する官能評価

\*フレークすなわち真珠光沢顔料を配合した化粧料について説明する。化粧料の評価は、下記「表7」に基づきパネラー10人による5段階の官能評価により行った。

【0044】

【表7】

評価\項目	のび	密着感	滑らかさ	光輝感	色のきれいさ
1	悪い	ない	ない	ない	汚い
2	やや悪い	ややない	ややない	あまりない	ややくすむ
3	普通	普通	普通	ややある	普通
4	ややよい	ややある	ややある	ある	きれい
5	よい	非常にある	非常にある	非常に高い	非常にきれい

【0045】官能評価の結果は、パネラー10名の5段階評価の平均値であり、その評価を分かり易くするために下記の記号で表す。

◎・・・4.5以上5.0まで

○・・・3.5以上4.5未満

●・・・2.5以上3.5未満

△・・・1.5以上2.5未満

※×・・・1.0以上1.5未満

【0046】（実施例9）：パウダーファンデーション  
下記「表8」に示す材料からなるパウダーファンデーションを製造した。

【0047】

【表8】

(1) 酸化チタン	7
(2) タルク	20
(3) 白雲母	3
(4) 実施例2のガラスフレーク	55
(5) ナイロンパウダー	2
(6) 赤色酸化鉄	0.5
(7) 黄色酸化鉄	1
(8) 黒色酸化鉄	0.1
(9) シリコーンオイル	1
(10) パルミチン酸2-エチルヘキシル	9
(11) セスキオレイン酸ソルビタン	1
(12) 防腐剤	0.3
(13) 香料	0.1 (重量%)

【0048】上記材料(1)～(8)をヘンシェルミキサーで混合し、この混合物に上記材料(9)～(13)を加熱溶解させ混合したものを添加混合し、これをパルバイザーで粉碎した。さらに、これを直径5.3mmの中皿に吐出し、160kg/cm<sup>2</sup>の圧力で押圧成形し、パウダーファンデーションを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表9」に示す。

【0049】（比較例8）：パウダーファンデーション  
上記材料(4)ガラスフレークを比較例1のマイカに置換し、それ以外を実施例9と同様にしてパウダーファン★

★デーションを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表9」に示す。

【0050】（比較例9）：パウダーファンデーション  
上記材料(4)ガラスフレークを比較例3のガラスフレークに置換し、それ以外を実施例9と同様にしてパウダーファンデーションを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表9」に併せて示す。

【0051】

【表9】

項目	のび	密着感	滑らかさ	光輝感	色のきれいさ
----	----	-----	------	-----	--------



実施例9	○	○	○	◎	◎
比較例8	○	○	○	○	○
比較例9	●	●	△	○	◎

【0052】「表9」より、実施例9の化粧料は、比較例8と比べ光輝感および色のきれいさで、比較例9と比べのび、密着感および滑らかさで優れていることが判る。

\*

\*【0053】（実施例10）：ブラッシャー下記「表10」に示す材料からなるブラッシャーを製造した。

【0054】

【表10】

(1) タルク	12.6
(2) 絹雲母	8.1
(3) マイカ	25.4
(4) 実施例3のガラスフレーク	45.0
(5) 赤色226号	0.4
(6) スクワラン	3.0
(7) パルミチン酸2-エチルヘキシル	5.0
(8) 防腐剤	0.3
(9) 香料	0.2 (重量%)

【0055】上記材料(1)～(5)をヘンシェルミキサーで混合し、この混合物に上記材料(6)～(9)を加熱溶解させ混合したものを吹き付け混合した後、パルペライザーを用いてこれを粉砕した。さらに、これを4×6cmの中皿に吐出し、120kg/cm<sup>2</sup>で押圧成形して、ブラッシャーを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表11」に示す。

【0056】（比較例10）：ブラッシャー

実施例10の材料(4)ガラスフレークを比較例2のマイカに置換し、それ以外を実施例10と同様にしてブラ※30

※ッシャーを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表11」に示す。

【0057】（比較例11）：ブラッシャー

実施例10の材料(4)ガラスフレークを比較例3のガラスフレークに置換し、それ以外を実施例10と同様にしてブラッシャーを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表11」に併せて示す。

【0058】

【表11】

項目	のび	密着感	滑らかさ	光輝感	色のきれいさ
実施例10	○	○	○	◎	◎
比較例10	○	○	○	○	○
比較例11	●	●	△	○	◎

【0059】「表11」より、実施例10の化粧料は、比較例10と比べ光輝感および色のきれいさで、比較例11と比べのび、密着感、滑らかさおよび光輝感で優れていることが判る。

【0060】（実施例11）：ネイルエナメル

★

★下記「表12」に示す材料からなるネイルエナメルを製造した。

【0061】

【表12】

(1) ニトロセルロース	12
(2) 変成アルキド樹脂	12
(3) クエン酸アセチルトリブチル	5
(4) 酢酸n-ブチル	36.4
(5) 酢酸エチル	6
(6) n-ブチルアルコール	2
(7) トルエン	21

15	16
(8) 酸化鉄顔料	0.5
(9) 二酸化チタン	0.1
(10) 実施例7のガラスフレーク	3
(11) マイカ	1
(12) 有機変成モンモリロナイト	1 (重量%)

【0062】上記材料(1)～(7) (ただし材料(4)は一部分)を溶解し、この溶液に材料(12)と材料(4)の残部とを混合してゲル状にしたものを添加混合し、さらに材料(8)～(11)を添加混合した。この混合物を所定の容器に充填し、ネイルエナメルを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表13」に示す。

【0063】(比較例12)：ネイルエナメル  
実施例11の材料(10) ガラスフレークを比較例6のマイカに置換し、それ以外は実施例11と同様にしてネ\*

\*イルエナメルを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表13」に示す。

【0064】(比較例13)：ネイルエナメル

10 実施例11の材料(10) ガラスフレークを比較例3のガラスフレークに置換し、それ以外は実施例11と同様にしてネイルエナメルを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表13」に示す。

【0065】

【表13】

項目	のび	密着感	滑らかさ	光輝感	色のきれいさ
実施例11	○	○	◎	◎	◎
比較例12	○	○	○	○	○
比較例13	●	●	△	○	◎

【0066】「表13」より、実施例11の化粧料は、比較例12と比べ滑らかさ、光輝感および色のきれいさで、比較例13と比べのび、密着感、滑らかさおよび光輝感で優れていることが判る。

【0067】(実施例12)：乳化ファンデーション ※

※下記「表14」に示す材料からなる乳化ファンデーションを製造した。

【0068】

【表14】

(1) ステアリン酸	0.4
(2) イソステアリン酸	0.3
(3) 2-エチルヘキサン酸セチル	4
(4) 流動パラフィン	11
(5) ポリオキシエチレン(10) ステアリルエーテル	2
(6) タルク	8
(7) 顔料	4
(8) セチルアルコール	0.3
(9) 防腐剤	0.07
(10) 実施例6のガラスフレーク	10
(11) トリエタノールアミン	0.42
(12) プロピレングリコール	5
(13) 防腐剤	0.02
(14) イオン交換水	54.19
(15) 香料	0.3 (重量%)

【0069】上記材料(1)～(9)を85℃で溶解させ混合し、これに上記材料(10)を添加し均一に分散させた。また、これに上記材料(11)～(14)を85℃で溶解させ混合した混合物を徐々に添加し乳化させた。乳化時の温度を10分間保持して攪拌した後、攪拌

しながら45℃まで冷却した。これに材料(15)を加え35℃まで攪拌冷却を続け、その後これを容器に充填して乳化ファンデーションを得た。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表15」に示す。

50 【0070】(比較例14)：乳化ファンデーション

実施例12の材料(10) ガラスフレークを比較例5のマイカに置換し、それ以外を実施例12と同様にして乳化ファンデーションを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表15」に示す。

【0071】(比較例15): 乳化ファンデーション  
実施例12の材料(10) ガラスフレークを比較例3の\*

\* ガラスフレークに置換し、それ以外を実施例12と同様にして乳化ファンデーションを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表15」に併せて示す。

【0072】

【表15】

項目	のび	密着感	滑らかさ	光輝感	色のきれいさ
実施例12	○	○	◎	◎	◎
比較例14	○	○	○	○	△
比較例15	●	●	△	○	◎

【0073】「表15」より、実施例12の化粧料は、比較例14と比べ滑らかさ、光輝感および色のきれいさで、比較例15と比べのび、密着感、滑らかさおよび光輝感で優れていることが判る。

※

※【0074】(実施例13): 口紅

下記「表16」に示す材料からなる口紅を製造した。

【0075】

【表16】

(1) 炭化水素ワックス	20
(2) キャンデリラワックス	3
(3) グリセリルイソステアレート	40
(4) 流動パラフィン	26.8
(5) 二酸化チタン	4
(6) 実施例7のガラスフレーク	4
(7) 有機顔料	2
(8) 香料	0.2 (重量%)

【0076】上記材料(1)～(4)を85℃で加熱溶解させ、これに(5)～(7)を加え攪拌混合した後、さらに(8)を混合攪拌し、その後所定の容器に充填して口紅を得た。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表17」に示す。

【0077】(比較例16): 口紅

実施例13の材料(6) ガラスフレークを比較例6のマイカに置換し、それ以外を実施例13と同様にして口紅を製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表★

★17」に示す。

【0078】(比較例17): 口紅

実施例13の材料(6) ガラスフレークを比較例3のガラスフレークに置換し、それ以外を実施例13と同様にして口紅を製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表17」に併せて示す。

【0079】

【表17】

項目	のび	密着感	滑らかさ	光輝感	色のきれいさ
実施例13	○	○	◎	◎	◎
比較例16	○	○	○	○	○
比較例17	●	●	△	○	◎

【0080】「表17」より、実施例13の化粧料は、比較例16と比べ滑らかさ、光輝感および色のきれいさ、比較例17と比べのび、密着感、滑らかさおよび光輝感で優れていることが判る。

【0081】(実施例14): アイシャドー ☆

☆下記「表18」に示す材料からなるアイシャドーを製造した。

【0082】

【表18】

19		20
(2) 白雲母	20	
(3) 実施例8のガラスフレーク	40	
(4) 顔料	12	
(5) スクワラン	4	
(6) セチル2-エチルヘキサノエート	1.9	
(7) ソルビタンセスキオレート	0.8	
(8) 防腐剤	0.1	
(9) 香料	0.2	(重量%)

【0083】上記材料(1)～(4)をヘンシェルミキ 10\*下記「表19」に示す。

サーで混合し、これに(5)～(9)を加熱混合したものを吹き付け混合した後粉碎した。これを所定の中皿に吐出して、アイシャドーを得た。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表19」に示す。

【0084】(比較例18):アイシャドー  
実施例14の材料(3)ガラスフレークを比較例7のマイカに置換し、それ以外を実施例14と同様にしてアイシャドーを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、\*

【0085】(比較例19):アイシャドー

実施例14の材料(3)ガラスフレークを比較例3のガラスフレークに置換し、それ以外を実施例14と同様にしてアイシャドーを製造した。この化粧料の官能評価の結果を、下記「表19」に示す。

【0086】

【表19】

項目	のび	密着感	滑らかさ	光輝感	色のきれいさ
実施例14	◎	◎	◎	◎	◎
比較例18	○	○	○	○	△
比較例19	●	●	△	○	◎

【0087】「表19」より、実施例14の化粧料は、比較例18と比べのび、密着感、滑らかさ、光輝感および色のきれいさで、比較例19と比べのび、密着感、滑らかさおよび光輝感で優れていることが判る。

【0088】

【発明の効果】この発明は、以上のように構成されているため、次のような効果を奏する。請求項1に記載の発明の真珠光沢顔料によれば、平均厚さ0.1～2.5 $\mu$ m、平均粒径1～300 $\mu$ mおよびアスペクト比10～500であり、母材がシリカを45～75重量%含有する表面が平滑なガラスフレークであって、さらに母材表面が酸化チタンなどの金属酸化物で被膜された真珠光沢顔料であるので、化粧料材料としてくすみがなく、非常に※

※良好な光輝感を発現し、肌上でのざらつき感がなく、のび、フィット感に優れる安価な真珠光沢顔料を提供することができる。

【0089】請求項2に記載の発明の真珠光沢顔料によれば、請求項1の発明の効果に加えて、母材の表面に貴金属およびチタニアが付着するので、600℃以下の加熱で緻密で安定型のルチル型チタニアの膜が形成される。

【0090】請求項3に記載の発明の化粧料によれば、この真珠光沢顔料を化粧料材料として用いるので、肌上でののびがよくかつフィット感に優れ、ざらつき感を生じさせることのない、光輝感に優れる発色のきれいな化粧料を提供することができる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.7

識別記号

F I

メモード(参考)

A 6 1 K 7/027

A 6 1 K 7/027

7/031

7/031

7/032

7/032

7/043

7/043

C 0 9 C 3/06

C 0 9 C 3/06

Fターム(参考) 4C083 AA122 AB171 AB172 AB232  
AB242 AB372 AB432 AB442  
AC012 AC022 AC032 AC072  
AC102 AC122 AC182 AC242  
AC262 AC342 AC352 AC372  
AC442 AC542 AC862 AD072  
AD092 AD152 AD262 BB25  
BB26 CC01 CC12 CC13 CC14  
CC28 DD17 DD31 EE06 EE07  
FF01 FF05  
4J037 AA18 AA30 CA09 DD09 DD10  
EE03 EE25 EE44 FF03 FF09